



PCT

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

<p>(51) 国際特許分類6 C09J 167/02, 5/06, G06K 19/077 // (C09J 167/02, 171:10, 161:06, 123:04, 163:00, 201:00, 193:00, 157:02)</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO99/29797</p> <p>(43) 国際公開日 1999年6月17日(17.06.99)</p>
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP98/05501</p> <p>(22) 国際出願日 1998年12月4日(04.12.98)</p> <p>(30) 優先権データ 特願平9/356184 1997年12月9日(09.12.97) JP</p> <p>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 東亜合成株式会社(TOAGOSEI CO., LTD.)(JP/JP) 〒105-8419 東京都港区西新橋一丁目14番1号 Tokyo, (JP)</p> <p>(72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 今堀 誠(IMAHORI, Makoto)(JP/JP) 山田成志(YAMADA, Masashi)(JP/JP) 高橋 伸(TAKAHASHI, Shin)(JP/JP) 中川修太(NAKAGAWA, Shuta)(JP/JP) 〒455-0027 愛知県名古屋市中区船見町1番地の1 東亜合成株式会社 名古屋総合研究所内 Aichi, (JP)</p> <p>(74) 代理人 弁理士 平本祐輔, 外(HIRAKI, Yusuke et al.) 〒105-0001 東京都港区虎ノ門一丁目17番1号 虎ノ門5森ビル3F Tokyo, (JP)</p>		<p>(81) 指定国 CN, JP, KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書</p>
<p>(54)Title: HOT-MELT ADHESIVE COMPOSITION AND RESIN-LAMINATED IC CARDS</p> <p>(54)発明の名称 樹脂積層型ICカード用ホットメルト接着剤組成物及び樹脂積層型ICカード</p> <p>(57) Abstract A hot-melt adhesive composition for resin-laminated IC cards, mainly comprising a saturated copolyester resin having a weight-average molecular weight ranging from 8,000 to 100,000; and resin-laminated IC cards wherein resin sheets are layered by means of the adhesive composition.</p>		

(57)要約

重量平均分子量が 8,000 以上 100,000 以下である飽和共重合ポリエステル樹脂を主成分とする樹脂積層型 IC カード用ホットメルト接着剤組成物、及び、この接着剤組成物により樹脂シートが積層接着されている樹脂積層型 IC カード。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	ES	スペイン	LI	リヒテンシュタイン	SG	シンガポール
AL	アルバニア	FI	フィンランド	LK	スリ・ランカ	SI	スロヴェニア
AM	アルメニア	FR	フランス	LR	リベリア	SK	スロヴァキア
AT	オーストリア	GA	ガボン	LS	レソト	SL	シエラ・レオネ
AU	オーストラリア	GB	英国	LT	リトアニア	SN	セネガル
AZ	アゼルバイジャン	GD	グレナダ	LU	ルクセンブルグ	SZ	スワジランド
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GE	グルジア	LV	ラトヴィア	TD	チャード
BB	バルバドス	GH	ガーナ	MC	モナコ	TG	トーゴ
BE	ベルギー	GM	ガンビア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BF	ブルキナ・ファソ	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BG	ブルガリア	GW	ギニア・ビサウ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TR	トルコ
BJ	ベナン	GR	ギリシャ		共和国	TT	トリニダード・トバゴ
BR	ブラジル	HR	クロアチア	ML	マリ	UA	ウクライナ
BY	ベラルーシ	HU	ハンガリー	MN	モンゴル	UG	ウガンダ
CA	カナダ	IE	インドネシア	MR	モリタニア	UZ	ウズベキスタン
CF	中央アフリカ	IL	イスラエル	MW	マラウイ	UZ	ウズベキスタン
CG	コンゴ	IN	インド	MX	メキシコ	VN	ヴェトナム
CH	スイス	IS	アイスランド	NE	ニジェール	YU	ユーゴスラビア
CI	コートジボアール	IT	イタリア	NL	オランダ	ZA	南アフリカ共和国
CN	中国	JP	日本	NO	ノールウェー	ZW	ジンバブエ
CU	キューバ	KE	ケニア	NZ	ニュージーランド		
CY	キプロス	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
CZ	チェコ	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
DE	ドイツ	KR	韓国	RO	ルーマニア		
DK	デンマーク	KZ	カザフスタン	RU	ロシア		
EE	エストニア	SE	スウェーデン	SD	スーダン		
		LC	セントルシア	SE	スウェーデン		

明 細 書

樹脂積層型ICカード用ホットメルト接着剤組成物及び樹脂積層型ICカード

技術分野

本発明は、樹脂積層型ICカードおよび該樹脂積層型カードの製造に用いられるホットメルト接着剤組成物に関するものである。より詳細にはLSI、コンデンサー、コイル等の部品が実装されたICカード本体に1枚以上の樹脂シートをラミネートして製造される樹脂積層型カードおよび該ラミネートに使用される接着剤に関するものであり、電子材料製造技術に属するものである。

背景技術

従来、電子部品を実装する樹脂製ICカードとして、特開平6-122297号公報に示すものがある。このものでは、カード本体のうち電子部品を収納する部分にUV硬化型液状樹脂を注入し、この上に透明シートを置き、この後、UVランプを照射して液状樹脂を硬化させシートを張り合わせるようにしている。

また、例えば、特開平6-24187号公報には、電子部品を樹脂シートに接着する際に、粘着剤層の両側に離型紙層を設けた両面粘着シートを電子部品の形状にハーフカットしたものを用い、片面の離型紙を剥がして電子部品に貼り付け、次いでもう一方の離型紙を剥がしてプラスチックカードに貼り付ける方法も、開示されている。この際に用いられる両面粘着シートに用いられる粘着剤は、アクリル系粘着剤、エポキシ系粘着剤が一般的である。

さらに、特開平9-216485号公報にはホットメルト接着剤を用いることが開示され、特開平9-240178号公報にはホットメルト接着剤としてアクリル系ホットメルト接着剤が、特開平9-188077号公報にはホットメルト接着剤として特定のランダム共重合ポリエステルが開示されているが、特開平9-188077号公報に認められる様に、樹脂積層型ICカード用に適した接着剤が提供されるに至っていないのが現状である。

UV硬化型樹脂を使用するには、高価なUV照射装置が必要であるうえ工程を

複雑に組まねばならず、さらに、UV硬化型樹脂は硬化後のT_gが常温以上と高いために曲げ柔軟性がなく割れる等の問題を発生させ、UV硬化時に重合による体積減少があり、残留歪みを生じやすく電子部品を痛めたり、表面に歪みを発生する原因となるという問題点を有している。

粘着剤の使用では、樹脂の凝集力および密着性が低いため十分な接着強度が得られず、また耐熱性も低いという問題がある。更に、離型紙の使用が必須であり、作業が複雑になる。またホコリが付着し易いため信頼性に劣るという問題を有している。

発明の開示

本発明者等は、ホットメルト接着剤には上記した様な問題点が無いことに注目し、各種のホットメルト接着剤を調製し、電子部品が実装されたICカード本体としての樹脂製シートとラミネートされる樹脂シートとの接着強度が高く、かつ優れた耐熱性と曲げ柔軟性を有するICカードを簡便な製造工程で提供出来るホットメルト接着剤を見出すべく研究を行った。

上記課題を達成するために鋭意検討した結果、電子部品が実装されたICカード本体としての樹脂シートと、表層となる樹脂シート及び意匠シートとを特定の飽和共重合ポリエステル樹脂を主成分とするホットメルト接着剤で接着することにより、上記の問題を解決できることを見出し本発明を完成した。

すなわち、本発明は重量平均分子量が8,000以上100,000以下である飽和共重合ポリエステル樹脂を主成分とすることを特徴とする樹脂積層型ICカード用ホットメルト接着剤組成物に関するものであり、さらに電子部品を実装するICカード本体に該ホットメルト接着剤組成物により樹脂シートが積層接着されていることを特徴とする樹脂積層型ICカードに関するものである。

上記飽和共重合ポリエステル樹脂の酸成分としては、芳香族二塩基性酸、脂肪族二塩基性酸若しくは脂環式二塩基性酸又はこれらのエステル形成体由来のものが挙げられ、ポリオール成分としては、脂肪族グリコール又は脂環式グリコール由来のものが挙げられる。また、飽和共重合ポリエステル樹脂の酸成分の30モル%以上が芳香族二塩基性酸又はそのエステル形成体であることが好ましく、ポ

リオール成分の30モル%以上がエチレングリコール及び／又は1,4-ブタンジオールであることが好ましい。さらに、飽和共重合ポリエステル樹脂は、示差走査熱量計の測定による融解熱量が1 J/g以上である主たる吸熱ピーク温度が50℃以上200℃以下のものが挙げられる。

さらに、本発明の組成物は、ポリエチレン又はその誘導体（メルトフローレートの値が0.5 g/10分以上100 g/10分以下のものが好ましい）、エポキシ樹脂（例えばビスフェノールA型エポキシ樹脂）、テルペン樹脂（例えば芳香族テルペン樹脂）、フェノキシ樹脂、石油樹脂、フェノール樹脂及びロジン樹脂からなる群から選ばれる少なくとも一つを更に含むものでもよく、有機アルコキシシラン（例えばエポキシ基を有するもの）を更に含むものでもよい。

以下、本発明を詳細に説明する。

○樹脂シート

本発明に用いられるカード本体シート、意匠シート、表面保護シート等の樹脂シートとしては、PET、PVC、ポリカーボネート、ABS、ナイロン等を材質とする樹脂シート或いはこれら樹脂シートにAl等の金属箔をラミネートしたシートが使用できる。

電子部品は、回路基板上に形成されるか、または熱硬化型若しくは光硬化型樹脂等でモジュール化されていてもかまわない。基板の材質としては、PET、ポリフェニレンサルファイド、PVC、ポリイミド、ガラスエポキシフィルム、BTレジンフィルム等を用いることができる。

○ポリエステル樹脂

本発明で使用される接着剤は重量平均分子量が8,000以上100,000以下である飽和共重合ポリエステル樹脂を主成分とするホットメルト接着剤である。該ポリエステル樹脂の重量平均分子量（ゲル浸透クロマトグラフィー（GPC）による測定値でポリスチレン換算値）が8,000より小さいときは、凝集力に欠け、接着強度、特に、高温での接着強度が低下したり、軟化温度も小さくなる。また、重量平均分子量が100,000より大きいときは、塗工時の溶融粘度が

高くなり、電子部品の凹凸に充分塗れ広がらず、また十分に充填されないため、表面に凹凸を生じたり、また塗工樹脂の粘度を下げるため高い塗工温度が必要となり、結果として電子部品を傷めたり、生産速度が著しく低下したりするなどの問題が発生する。本発明にとり好ましい飽和共重合ポリエステル樹脂は、重量平均分子量10,000以上80,000以下のものである。

飽和共重合ポリエステル樹脂を構成する共重合モノマー成分としては種々のものが例示され、具体的には以下のモノマー成分を挙げることができる。

酸成分

例えば酸成分としては、テレフタル酸、イソフタル酸、無水フタル酸、 α -ナフタレンジカルボン酸、 β -ナフタレンジカルボン酸及びそれらのエステル形成体等の芳香族二塩基性酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバチン酸、ウンデシレン酸、ドデカン二酸及びそれらのエステル形成体等の脂肪族二塩基性酸、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、テトラヒドロ無水フタル酸、ヘキサヒドロ無水フタル酸等の脂環式二塩基性酸が挙げられる。

かかる化合物のうち、芳香族二塩基性酸、特にテレフタル酸及びそのエステル形成体が接着強度の点で本発明にとり好ましい。その芳香族二塩基性酸の含有割合を全酸成分に対して30モル%以上にするのが好ましく、その様に配合することにより、樹脂の凝集力や硬さが向上し、接着強度やねじ切り強度が高くなる。

また、トリメリット酸、ピロメリット酸などの多価カルボン酸もポリエステル合成時のゲル化や接着強度を損なわない範囲内で併用することが可能であり、全酸成分に対して5モル%以下の範囲で使用する事ができる。

ポリオール成分

ポリオール成分としては、エチレングリコール、1,2-プロピレングリコール、1,3-プロピレングリコール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサジオール、1,8-オクタンジオール、1,9-ノナンジオール、ネオペンチルグリコール、3-メチルペンタンジオール、2,2,3-トリメチルペンタンジオール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ジプロピレングリコール等の脂肪族グリコール、1,4-シクロヘキサンジメタノール、水

添ビスフェノールA等の脂環式グリコールが挙げられる。

また、グリセリン、トリメチロールエタン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール等のポリオールも全ポリオール成分に対し、5モル%以下の範囲で使用する事ができる。

これらのポリオールとしてエチレングリコールおよび／または1,4-ブタンジオールを使用することが本発明にとり好ましい。また、エチレングリコールおよび／または1,4-ブタンジオールの全ポリオール成分に対しての割合は30モル%以上であることが好ましい。30モル%以上にすることにより得られるポリエステル樹脂は凝集力、接着強度、耐熱性等に優れたものとなる。

ポリエステル樹脂としては、その融点(示差走査熱量計の測定による融解熱量が1J/g以上である主たる吸熱ピーク温度をいう)が50～200℃であるものが好ましく、70～150℃であるものがより好ましい。この範囲より小さいときは、樹脂の耐熱性が不足する様になり、この範囲より大きいときは、塗工温度や接着温度が高くなると電子回路の劣化や破損を招いたり、樹脂シートの熱劣化が起こったり、接着不良の原因となる恐れがある。

かかる飽和共重合ポリエステル樹脂は、通常の方法により製造される。例えば、原料及び触媒を重合反応容器に仕込み、生成物の融点以上の温度で加熱する熔融重合法、生成物の融点以下で重合する固相重合法、溶媒を使用する溶液重合法などがあり、いずれの方法を採用しても良い。但し、本発明の目的に沿う適度な重合度のポリエステルを得るため及び経済性の面からは熔融重合法が好ましく、エステル交換法や直接エステル化法により製造される。かかる熔融重合法によるポリエステル樹脂の製造は公知の方法である。

○ポリエチレン樹脂

本発明で使用される接着剤は上記飽和共重合ポリエステル樹脂を主成分とするホットメルト接着剤であるが、樹脂成分としてポリエチレン系樹脂を併用したものが本発明にとり好ましい。併用されるポリエチレン樹脂としては通常のもので用いられ、例えば、エチレンをラジカル重合してなる通常のポリエチレン樹脂のいずれも使用可能であり、高圧法で製造される低密度ポリエチレン、中圧法・低

圧法で製造される高密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン等が使用される。これらのポリエチレン樹脂のなかで特に好ましいものは、低密度ポリエチレン及び直鎖状低密度ポリエチレンである。

本発明で用いられるポリエチレン樹脂においては、プロピレン、スチレン等の α -オレフィンを共重合したり、無水マレイン酸、酢酸ビニル、アクリル酸、アクリル酸エステル、メタクリル酸、メタクリル酸エステルなどを共重合したものをを用いることもできるが、本発明の奏する効果を損なわないために、エチレンと共重合させるモノマーの割合は10重量%未満であることが好ましい。

ポリエチレン樹脂としては、そのメルトフローレート（試験温度190℃、試験荷重2.16kgf、JIS-K7660-1981に準じる）の値が0.5g/10分以上100g/10分以下であるものが好ましい。0.5g/10分未満であるとポリエステル樹脂との混合性が十分でなく、接着性能が低下する傾向にある。また、100g/10分を越えると、接着強度や接着耐久性が低下する傾向にある。更に好ましくは、メルトフローレートが1g/10分以上50g/10分以下のポリエチレン樹脂である。

本発明において、ポリエチレン樹脂の好ましい配合量は、上記ポリエステル樹脂100重量部に対して、5重量部以上100重量部以下である。この様に配合することにより、接着強度、接着耐久性等が向上する。さらに好ましいポリエチレン樹脂の配合量は10重量部以上50重量部以下である。

○有機アルコキシシラン

本発明で使用されるホットメルト接着剤は、添加剤として有機アルコキシシランが使用されているものが好ましく、有機アルコキシシランとしては、通常、シランカップリング剤と称されているものが使用できる。

有機アルコキシシランの具体例としては、例えば、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシトリエトキシシラン、 β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N- β -(アミノエチル)- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、 γ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -メタクリロキ

シプロピル-トリ(β -メトキシエトキシ)シラン等が挙げられる。

この中で好ましいものは、分子中にエポキシ基を含有する有機アルコキシシランである。

有機アルコキシシランの配合量はポリエステル樹脂 100 重量部に対して、0.1 重量部以上 10 重量部以下が好ましい。この範囲であれば、接着耐久性、特に、耐水性を混合後の安定性に問題を生じさせずに向上させることができる。さらに好ましい有機アルコキシシランの配合量は、0.3 重量部以上 5 重量部以下である。

○添加剤

本発明の接着剤組成物には有機アルコキシシラン以外にも、種々の目的で、各種の樹脂、無機充填剤、各種安定剤等を本発明の性能を損なわない範囲内で配合することが可能である。

樹脂としては、本発明以外のポリエステル樹脂、ポリプロピレン樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリウレタン樹脂、エポキシ樹脂、フェノキシ樹脂、フェノール樹脂、石油樹脂、テルペン樹脂、ロジン樹脂等を配合できる。

上記の樹脂のうち特に有用なものはテルペン樹脂である。特に芳香族変成テルペン樹脂は、本発明のポリエステル樹脂との相溶性が良く接着強度を向上させるために好ましい。また、同様にエポキシ樹脂も本発明のポリエステル樹脂との相溶性が良く、融点 40℃以上で 1 分子中に 2 個以上のグリシジル基を含有するエポキシ樹脂が好ましく、特に、ビスフェノール A 型エポキシ樹脂及びクレゾールノボラック型エポキシ樹脂が好ましい。ビスフェノール A 型エポキシ樹脂とは、ビスフェノール A とエピクロルヒドリンとを反応させて得られるものであって、例えば、エピコート 1004、エピコート 1007、エピコート 1009 (以上、油化シェルエポキシ(株)製) 等が挙げられる。また、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂とは、クレゾールとホルムアルデヒドを出発原料とし、エピクロルヒドリンを反応させて得られるものであって、アラルダイト ECN 1273、ECN 1280、ECN 1299 (以上、ノバルティス(株)製) 等が挙げられる。かかるエポキシ樹脂の配合量は、ポリエステル樹脂 100 重量部に対して好ましく

は50重量部以下、より好ましくは25重量部以下である。

無機充填剤としては、粒径10 μ m以下の炭酸カルシウム、酸化亜鉛、酸化チタン、タルク、クレー、フュームドシリカ等の粉末を用いることができ、その配合量は、ポリエステル樹脂100重量部に対して30重量部以下が好ましい。

安定剤としては、ヒンダードフェノール等の酸化防止剤の添加が可能である。これらの添加剤は本発明の特徴をさらに向上させる場合があり、適宜使用することが可能である。

以上の様な成分により構成されるホットメルト接着剤のうち本発明にとり好ましいホットメルト接着剤は、本発明の目的とする効果をより効率的に発揮できるT_gが30℃以下でかつ融点が70℃以上150℃以下であるホットメルト接着剤である。

○接着剤の製造方法

本発明において接着剤組成物は、使用する飽和共重合ポリエステル樹脂の、またポリエチレン樹脂が配合されているときはそれらの軟化温度以上の温度で熔融混合して接着剤とすることが好ましい。混合装置としては、単軸若しくは二軸のスクリー方式の熔融混練機、又はニーダー式加熱混合機に代表される通常の熱可塑性樹脂の混合機が用いられる。

混練に引き続いて、造粒工程によりペレット化して用いることも、混練品を直接樹脂シート上に塗工して使用することも可能である。

これらの工程で最も好ましい装置は、二軸スクリー方式による押出機であり、加工時のシリンダー最高温度をポリエステル樹脂の軟化温度より10℃～100℃高い温度で操作するのが好ましい。

○接着方法

本発明の接着剤組成物を用いて接着するにあたっては、例えば、前記の製造方法により造粒されたペレットを用い、Tダイを有する熔融押出機により離型フィルム上にシートとして押出成形し、離型シートを剥がしたフィルムを樹脂シート間に挟み込み熱プレスにより接着する。この時、全ての構成材料を重ね一度に熱

プレスするかまたはいくつかの構成材料を数回に分けて熱プレスして成型してもよい。また、熱ラミネーターで加熱されたロール間に構成材料を挿入しラミネートしても良い。加熱プレスも1度または数回に分けて行うことが可能である。

接着温度は、接着剤層が100℃～200℃となる様に設定し、時間も基材に構成材料や、雰囲気温度に合わせて調整する。

塗工後の接着剤の膜厚は2μm～1mm、好ましくは5～400μmであり、電子部品の凹凸を埋めるために必要な厚さとする。

○用途

本発明の接着剤組成物を用いて製造される樹脂積層型ICカードは、クレジットカード、銀行カード、IDカード、定期券、テレホンカード、運転免許証、高速道路の料金徴収用カード、パスポート、保険証等の用途に用いられるものである。

作用

本発明の接着剤はホットメルト接着剤であり、樹脂積層型ICカードの製造において、積層するフィルム間に接着剤を挟み、熱プレスによってフィルムを接着するものであり、高い接着強度、柔軟性、耐熱接着性、および優れた充填性とシール性を提供するものである。

本発明の接着剤が使用される樹脂シートの材質は、例えばPET、PVC、ポリカーボネート、ABS、ナイロン、或いはこれら樹脂にAl等の金属箔がラミネートされているシートからなる樹脂積層型ICカードに広く使用され、これらに適用した場合に高い接着強度と長期にわたる耐久性を発揮する。また、本発明のホットメルト接着剤組成物は、電気特性にも優れ、高い電気絶縁性を有する。高い接着強度、耐久性が得られる理由は以下の様に考えられる。

①ポリエステル樹脂が上記のカードに使用される樹脂に強固に接着する。

②ポリエチレン樹脂を配合することにより、ポリエステル樹脂の結晶化による収縮が抑えられ、接着剤層の内部応力の緩和に寄与し、接着強度が経時的に変化しない。

③有機アルコキシシランの配合により、樹脂表面への接着性が増し、かつ、有機基とポリエステル樹脂との相溶性が向上し、高い接着強度を発現する。

④適度の分子量により生じるポリエステル樹脂の結晶性により、樹脂の凝集力が高く、高レベルの耐熱性を付与できる。

発明を実施するための最良の形態

以下本発明の実施例について、比較例とともに述べる。但し、本発明は、これら実施例に技術的範囲が限定されるものではない。

なお、実施例等の説明に先立ち、以下の記載における物性値の測定方法及び評価方法について述べる。

○物性の測定方法

重量平均分子量

G P Cにより測定し、ポリスチレン換算値で表した。

融点

示差走査型熱量計により、主たる吸熱ピークの温度を融点とした。

ガラス転移点

示差走査型熱量計により、階段状変化部分の低温側の変曲点の温度をガラス転移点とした。

○接着方法

接着剤フィルムをカード状の型で打ち抜いた未処理 P E T 厚さ $100\mu\text{m}$ (S-10 ダイヤホイル、ヘキスト社製)間に挟んだ後、熱プレスで、 $150^{\circ}\text{C} \times 10$ 分 0.25MPa 加熱接着し強度を測定した。

○接着性能 (J I S-K-6854「接着剤の接着剥離接着強さ試験方法に準拠」)

接着した P E T 樹脂カードを幅 25mm に切断して、 23°C 中、引張り速度 $200\text{mm}/\text{分}$ で強度を測定した。測定は、初期 (接着直後)、 85°C 、 $95\% \text{RH}$ (相対湿度) で 24 時間後、及び 23°C 、 $65\% \text{RH}$ で 1 日放置したものを使用した。

実施例 1

○ポリエステル樹脂の合成

攪拌装置、窒素導入管、留出管、温度計を備えた四ツ口フラスコに、テレフタル酸ジメチル0.65モル、1,4-ブタンジオール0.8モル、エチレングリコール1.2モル及び、触媒としてテトラ-n-ブチルチタネート 0.2×10^{-2} モルを仕込み、窒素を導入しながら昇温し、130～200℃でメタノールを留出させた。その後、セバチン酸0.18モル及びアジピン酸0.18モルを加えて、200～240℃で水を留出させた後、引き続き、徐々に減圧にしながら、260℃で1mmHgの減圧下で3時間反応を続けた。得られたポリエステル樹脂は、融点120℃、ガラス転移点0℃、重量平均分子量18,000であった。NMR分析によるモノマー組成は、モル比でテレフタル酸／アジピン酸／セバチン酸／エチレングリコール／1,4-ブタンジオール＝64／18／18／60／40であった。これをポリエステル樹脂Aとする。

○接着剤調製

ポリエステル樹脂Aを100重量部に対し、低密度ポリエチレン樹脂ミラソン100L(メルトフローレート9.5g/10分、三井化学(株)製、以下これをポリエチレン樹脂Aとする)30重量部、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン(以下有機アルコキシシランAとする)2重量部を二軸スクリー押出機で混合し、40 μ mのフィルム状接着剤を作成した。

○接着性能

このフィルム状接着剤を用いて、前記の接着方法によりPETを積層したカードを作成し、剥離強度及び湿熱耐久性試験を実施した。結果を表1に示す。

実施例2～6

実施例1と同様にして、ポリエステル樹脂A、ポリエチレン樹脂A、低密度ポリエチレン樹脂ミラソンFL60(メルトフローレート70g/10分、三井化学(株)製、以下これをポリエチレン樹脂Bとする)用い、さらに、有機アルコキシシランA、及び β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン(以下これを有機アルコキシシランBとする)を用い、また、その他の添加剤として室温で固体状のビスフェノールA型エポキシ樹脂であるエピコート1007(融点

122～132℃、油化シエルエポキシ(株)製、以下エポキシ樹脂Aとする)、芳香族変性テルペン樹脂であるYSレジンTO-105(軟化点105℃、ヤスハラケミカル(株)製、以下テルペンAとする。)及びタルクを用いて、表1に示した割合で配合して接着剤を調製し、そのフィルムを作成し、PETを積層したカードを作成した。剥離強度及び湿熱耐久性試験を実施した結果を表1に示す。

表 1

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6
組成						
ポリエステル樹脂 A	100	100	100	100	100	100
ポリエチレン樹脂 A	20		30	50		20
〃 B		20				
エポキシ樹脂 A			20			
テルペン樹脂 A						20
有機アルコキシシラン A	2		3	2		2
〃 B		2				
タルク			5			
物性						
融点 (℃)	125	119	111	125	125	115
ガラス転移点 (℃)	-3	0	0.2	1.0	-3	0.5
接着性能						
剥離強度(N/25mm)						
初期	23	25	28	25	23	22
耐久性試験後	20	22	21	19	10	20

実施例 7～10、比較例 1～3

実施例 1と同様にして、表 2の重合組成でポリエステル樹脂を合成した。表中には、生成したポリエステル樹脂中のモノマー組成比をモル比で表示し、その樹脂物性も表した。

これらポリエステル樹脂 100重量部に対して、前記ポリエチレン樹脂 Aを 30重量部、有機アルコキシシラン Aを 2重量部及びエポキシ樹脂 Aを 20重量部

配合してフィルム状接着剤を作成し、更にPET樹脂カードを作成し、接着性能を評価した。その結果を表2に示す。

表 2

	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	比較例1	比較例2	比較例3
ポリエステル組成							
テレフタル酸	60	40	64	64	64	30	30
イソフタル酸	30	30					20
アジピン酸	10	30	18	18	18	70	15
セバチン酸			18	18	18		35
1,4-ブタンジオール	50	100	40	40	40	100	
エチレングリコール			60	60	60		60
ネオペンチルグリコール	50						40
ポリエステル物性							
重量平均分子量 ($\times 1000$)	20	12	36	50	5	30	60
融点 ($^{\circ}\text{C}$)	109.1	110.5	112	115	123	70	ビーク無
ガラス転移点 ($^{\circ}\text{C}$)	25.0	-14.5	-5.5	-2.5	-6.5	-52	-14.5
接着性能							
剥離強度							
初期 (N/25mm)	28	25	28	29	17	10	9
耐久性試験後	19	20	24	25	3	6	8

比較例 4

エチレン-酢酸ビニル樹脂であるエバフレックスEV-150（メルトフローレート30g/10min、酢酸ビニル含有率33重量%、三井化学(株)製）100重量部に対し前記実施例で用いたポリエチレン樹脂A 30重量部、ビスフェノールA型エポキシ樹脂 20重量部および有機アルコキシシランA 2重量部を配合した接着剤を用いて実施例1と同様にして評価したところ、融点105 $^{\circ}\text{C}$ 、ガラス転移点-10 $^{\circ}\text{C}$ であり、剥離強度は初期10N/25mm、耐久性試験後で3N/25mm

であった。

産業上の利用可能性

本発明の接着剤組成物は、揮発成分のない熱溶融型接着剤のため、引火の危険性や臭気が少なく、安全性に優れ、また冷却後に接着完了するという高速接着性を有しており、また、フィルムに加工出来ることから、作業性と生産性に優れている。樹脂製カード、特にPETやPVCのフィルムから成るカードに適用した際、接着性に優れ、かつ高度の耐熱性と耐久性を有し、多様な過酷な条件下でも高い接着性を保持しているため、当該業界で、クレジットカード、銀行カード、IDカード、定期券、テレホンカード、運転免許証、高速道路の料金徴収用カード、パスポート、保険証等の用途に用いられるICカードに広く応用できるものである。

請 求 の 範 囲

1. 重量平均分子量が8,000以上100,000以下である飽和共重合ポリエステル樹脂を主成分とすることを特徴とする樹脂積層型ICカード用ホットメルト接着剤組成物。
2. 飽和共重合ポリエステルの酸成分が、芳香族二塩基性酸、脂肪族二塩基性酸若しくは脂環式二塩基性酸又はこれらのエステル形成体由来である請求項1記載の組成物。
3. 飽和共重合ポリエステルのポリオール成分が、脂肪族グリコール又は脂環式グリコール由来である請求項1記載の組成物。
4. 飽和共重合ポリエステルの酸成分の30モル%以上が芳香族二塩基性酸又はそのエステル形成体である請求項1記載の組成物。
5. 飽和共重合ポリエステルのポリオール成分の30モル%以上がエチレングリコール及び／又は1,4-ブタンジオールである請求項1記載の組成物。
6. 飽和共重合ポリエステルの酸成分の30モル%以上が芳香族二塩基性酸又はそのエステル形成体であり、ポリオール成分の30モル%以上がエチレングリコール及び／又は1,4-ブタンジオールである請求項1記載の組成物。
7. 飽和共重合ポリエステル樹脂が、示差走査熱量計の測定による融解熱量が1J/g以上である主たる吸熱ピーク温度が50℃以上200℃以下のものである請求項1記載の組成物。
8. ポリエチレン又はその誘導体、エポキシ樹脂、テルペン樹脂、フェノキシ樹脂、石油樹脂、フェノール樹脂及びロジン樹脂からなる群から選ばれる少なくとも一つを更に含む、請求項1記載の組成物。
9. 有機アルコキシシランを更に含む、請求項1記載の組成物。
10. ポリエチレンまたはその誘導体のメルトフローレートの値が0.5g/10分以上100g/10分以下(190℃、荷重2.16kgf、JIS-K-7660-1981に準じる)である請求項8記載の組成物。
11. テルペン樹脂が芳香族テルペン樹脂である請求項8記載の組成物。

- 1 2. エポキシ樹脂がビスフェノール A 型エポキシ樹脂である請求項 8 記載の組成物。
- 1 3. 有機アルコキシシランがエポキシ基を有するものである請求項 9 記載の組成物。
- 1 4. 電子部品を実装する IC カード本体に請求項 1 ～ 1 3 のいずれか 1 項に記載の組成物により樹脂シートが積層接着されていることを特徴とする樹脂積層型 IC カード。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP98/05501

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁶ C09J167/02, C09J5/06, G06K19/077 // (C09J167/02, C09J171:10,
C09J161:06, C09J123:04, C09J163:00, C09J201:00, C09J193:00, C09J157:02)

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁶ C09J, G06K19/00-19/18

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-1999
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-1999 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-1999

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI/L

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 7-1878, A (Sony Corp.), 6 January, 1995 (06. 01. 95), Claims ; column 7, lines 43 to 46 (Family: none)	1-14
Y	JP, 62-41096, A (Toppan Moore Co., Ltd.), 23 February, 1987 (23. 02. 87), Claims ; page 6, upper left column, line 19 to upper right column, line 1 (Family: none)	1-14
Y	JP, 1-254789, A (Toagosei Chemical Industry Co., Ltd.), 11 October, 1989 (11. 10. 89), Claims ; page 2, lower left column, line 1 to page 5, lower right column, line 10 ; Examples (Family: none)	1-14
Y	JP, 9-279115, A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 28 October, 1997 (28. 10. 97), Claims ; column 4, lines 9 to 17 ; Examples (Family: none)	1-9, 12-14

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"I" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
2 March, 1999 (02. 03. 99)

Date of mailing of the international search report
9 March, 1999 (09. 03. 99)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP98/05501

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 9-184593, A (Toa Gosei Co., Ltd.), 15 July, 1997 (15. 07. 97), Claims ; column 2, line 36 to column 6, lines 11, 38 to 50 (Family: none)	1-14
Y	JP, 9-20882, A (Panac K.K.), 21 January, 1997 (21. 01. 97), Claims ; column 2, lines 12 to 15 ; Examples (Family: none)	1-8, 12
Y	JP, 8-48961, A (Toyobo Co., Ltd.), 20 February, 1996 (20. 02. 96), Claims ; column 5, lines 30 to 35 (Family: none)	1-8
Y	JP, 6-306346, A (Minnesota Mining and Manufacturing Co.), 1 November, 1994 (01. 11. 94), Claims ; column 8, lines 15 to 21 & EP, 620259, A2 & CA, 2115888, A	1-8, 12
Y	JP, 58-125777, A (Toagosei Chemical Industry Co., Ltd.), 26 July, 1983 (26. 07. 83), Claims ; column 1, lower left column, lines 11 to 14 (Family: none)	1-7, 9

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl⁹ C09J167/02, C09J5/06, G06K19/077//
 (C09J167/02, C09J171:10, C09J161:06, C09J123:04,
 C09J163:00, C09J201:00, C09J193:00, C09J157:02)

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl⁹ C09J, G06K19/00-19/18

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-1999年
 日本国登録実用新案公報 1994-1999年
 日本国実用新案登録公報 1996-1999年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P, 7-1878, A (ソニー株式会社), 6. 1月. 1995 (06. 01. 95), 特許請求の範囲, 7欄43-46行 (ファミリーなし)	1-14
Y	J P, 62-41096, A (トツパン・ムーア株式会社), 23. 2月. 1987 (23. 02. 87), 特許請求の範囲, 6頁左上欄19行-右上欄1行 (ファミリーなし)	1-14
Y	J P, 1-254789, A (東亜合成化学工業株式会社), 11. 10月. 1989 (11. 10. 89), 特許請求の範囲, 2頁左下欄1行-5頁右下欄10行, 実施例 (ファミリーなし)	1-14
Y	J P, 9-279115, A (日立化成工業株式会社), 28. 10月. 199	1-9, 12-14

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02. 03. 99

国際調査報告の発送日

09.03.99

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

大熊 幸治

4 J

9042

電話番号 03-3581-1101 内線 3459

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
	7 (28. 10. 97), 特許請求の範囲, 4 欄 9-17 行, 実施例 (ファミリーなし)	
Y	JP, 9-184593, A (東亜合成株式会社), 15. 7月. 1997 (15. 07. 97), 特許請求の範囲, 2 欄 36 行-6 欄 11 行, 6 欄 38-50 行 (ファミリーなし)	1-14
Y	JP, 9-20882, A (パナック株式会社), 21. 1月. 1997 (21. 01. 97), 特許請求の範囲, 2 欄 12-15 行, 実施例 (ファミリーなし)	1-8, 12
Y	JP, 8-48961, A (東洋紡績株式会社), 20. 2月. 1996 (20. 02. 96), 特許請求の範囲, 5 欄 30-35 行 (ファミリーなし)	1-8
Y	JP, 6-306346, A (ミネソタ マイニング アンド マニュファクチャリング カンパニー), 1. 11月. 1994 (01. 11. 94), 特許請求の範囲, 8 欄 15-21 行 & EP, 620259, A2 & CA, 2115888, A	1-8, 12
Y	JP, 58-125777, A (東亜合成化学工業株式会社), 26. 7月. 1983 (26. 07. 83), 特許請求の範囲, 1 頁左下欄 11-14 行 (ファミリーなし)	1-7, 9